

配合炭流動度およびコークス収縮量予測モデル —コークス炉における劣質炭多量配合操業—*

川崎製鉄技報
29 (1997) 1, 6-10

Prediction of Blended Coal Fluidity and Lateral Contraction of Coal in Coke Ovens —Technology for Increasing Charging Ratio of Low Quality Coal in Cokemaking—



松井 貴
Takashi Matsui
技術研究所 製鉄研究
部門



井川 勝利
Katsutoshi Igawa
技術研究所 製鉄研究
部門 主任研究員(部長
補)



反町 健一
Ken-ichi Sorimachi
技術研究所 製鋼研究
部門長(部長)・工博

要旨

コークス炉でのコークス押出し抵抗を低減するために、配合炭流動度推定モデルおよびコークス収縮量推定モデルを開発した。流動度推定モデルは、溶融状態を溶融した石炭に未溶融石炭とコークスが混在する懸濁液として取り扱い、懸濁液の粘度を溶媒粘度と固相比率から求めることにより推定精度を向上させた。クリアランス推定モデルは、乾留時の収縮力と膨張圧のバランスに基づき、収縮力が膨張圧を上回った時点でクリアランスの生成が開始するものとして取り扱い、収縮力はコークスの粘弾性を考慮し、膨張圧は溶融層におけるガスの発生および通気性を考慮してそれぞれ計算した。これらモデルの配合設計システムへの導入は、コークス押出し不良の減少およびコークス強度管理精度の向上による劣質炭使用量の増加を可能とした。

Synopsis:

New models for estimating the maximum fluidity (MF) of blended coal and the clearance between the coke oven wall and coke cake were developed to reduce hard pushing rate in coke ovens. In the MF model, heated coal during carbonization is regarded as a suspension composed of melted coal, unmelted coal and solidified coke. The viscosity of the suspension was evaluated by Mori's equation, which included the viscosity of the solvent and volume fractions of solid. The clearance model is based on the balance between the contraction force and coking pressure. A clearance begins to appear when the contraction force exceeds the coking pressure in this model. The contraction force is calculated in consideration of the visco-elastic behavior of the thermal shrinkage of coke. The coking pressure is calculated from the generation and dispersion of gas in the melting layer. Use of these models in the coal blending design system has successfully reduced the hard pushing rate. Moreover, precise control of coke strength with the new system has made it possible to increase the use of low-grade coal.

1 緒 言

石炭の配合設計はコークス品質とコークスの押出し性を考慮して決定されることが望ましいが、押出し性については、従来、配合炭の揮発分やガス圧を経験的に管理する方法^{1)~3)}が提案されているが十分とは言えない。近年、安価劣質炭の使用増によって配合炭構成が多様化する一方で、コークス押出時の押詰り問題がコークス炉の炉体寿命延長上の最重要課題となってきており、押出し性を考慮し

た配合設計の必要性が高まっている。

コークスの押出し性には炉幅方向の収縮量管理が重要であり⁴⁾、コークス収縮量を予測する方法として、膨張・収縮量の総和より算出する方法⁵⁾や、実験から得られた見掛けの線収縮係数を用いてコークス収縮量を算出する方法⁶⁾などが研究されている。しかし、これらの方法では膨張・収縮の相互作用が力学的には扱われておらず、収縮挙動が必ずしも明瞭になっているとは言えない。

一方、コークス強度およびコークスの収縮を管理する上で重要な配合炭の最高流動度 MF は、各単味炭の MF 値を加重平均する方法が一般的に採用されている。しかし、この方法では単味炭の石炭化度範囲が大きくなる程、推定精度が低下するため、各単味炭の流

* 平成9年2月24日原稿受付

動度曲線の重ね合わせによる推定方法^{6)~9)}や、配合炭のペトログラフィから推定する方法⁹⁾などの改善策が検討されているが、いずれも推定精度が十分とは言えない。

筆者らは劣質炭を多量配合していく上で配合炭の流動度とコークス収縮量の精密な評価が不可欠と考え、配合炭の流動度を懸濁液の粘度として推算するモデルとコークスの収縮を力学的に考慮したモデルを開発した。本報ではこれらモデルの概要とその運用状況について述べる。

2 配合炭流動度推定モデル

2.1 モデルの考え方

Fig. 1 に示すように球形の石炭粒子（段階1）が加熱によって粒子表面から溶融していく状態（段階2）を想定すると、ガスを含む溶融成分の溶媒中に未溶融成分が存在する懸濁液と考えることができる（段階3）。懸濁液の粘度推定式は種々報告^{10)~13)}されているが、本モデルでは森らの式¹²⁾を基礎式として用いた。森らによると粘度 η_L (Pa·s) の溶媒中に、粒子半径 d (m) の粒子が懸濁している場合の懸濁液粘度 η (Pa·s) は (1) 式で表される。ここで、 S_r (m²) は全粒子の表面積、 S は固相比率、 g_{scr} は極限固相比率である。球形粒子の場合、粒子半径 d と S_r の関係は (2) 式で示されることから、極限固相比率を0.52とすると、(1) 式は (3) 式で記述される。

$$\eta = \eta_L \{1 + (d \cdot S_r / 2) / (1/S - 1/g_{scr})\} \quad (1)$$

$$d \cdot S_r / 2 = 3 \quad (2)$$

$$\eta = \eta_L \{1 + 3 / (1/S - 1/0.52)\} \quad (3)$$

粘度のギスラー流動度 F (ddpm) への換算は、諸富らが算出した (4) 式¹⁴⁾を採用した。ここで K_1 、 K_2 は定数である。

$$\log F = K_1 \cdot \log \eta + K_2 \quad (4)$$

Fig. 2 に本モデルの計算フローを示す。まず単味炭流動度の測定結果に基づいて、各単味炭の固相比率と溶媒粘度を求める。次に配合炭固相比率を各単味炭の加重平均で、溶媒粘度を Arrhenius の式¹⁵⁾で算出し、配合炭粘度を最終的に求める。

2.2 単味炭流動度の温度関数推算方法

各単味炭の固相比率と溶媒粘度は以下の仮定に基づき計算する。

- (1) ガス放出による体積減少は無視する。
 - (2) 固相比率 S は粒子径 d で決定される。
 - (3) 最高流動温度ではイナート成分以外はすべて溶融している。
- 温度 T (°C) での固相比率 S_T は粒子径を用いて (5) 式により計算される。 d_T は温度 T での粒子径、 d_0 は溶融前の初期粒子径を示す。粒子径の変化速度については温度の一次式とし (6) 式で計算する。

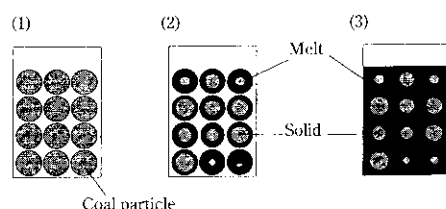


Fig. 1 Concept of MF calculation model

$$S_T = (d_T/d_0)^3 \quad (5)$$

$$d_T = A \cdot T + B \quad (6)$$

定数 A 、 B は、軟化過程では軟化点と最高流動温度の粒子径から、固化過程では固化点と最高流動温度の粒子径で、それぞれ算出する。軟化点、固化点および最高流動温度での溶媒粘度は固相比率の計算値、および流動度の実測値を用い (3)~(4) 式で計算する。温度 T における溶媒粘度 $\eta_{L,T}$ は (7) 式に示す Andrade の式¹⁶⁾に基づき、軟化過程、固化過程についてそれぞれ計算する。定数 C_1 と活性化エネルギー E_a (kcal/mol) は軟化点、固化点および最高流動温度での溶媒粘度の数値から算出する。

$$\eta_{L,T} = C_1 \cdot \exp(E_a/RT) \quad (7)$$

2.3 配合炭流動度

配合炭の固相比率 S_{all} は単味炭 K の固相比率 S_K と配合率 Ra_K から (8) 式により計算される。一方、異なる粘度の液体を混合したときの溶媒粘度 η_L は (9) 式で表されることから、配合炭の溶媒粘度 $\eta_{L,all}$ は固相比率を用いて (10) 式で計算される。配合炭の粘度 η_{all} は S_{all} と $\eta_{L,all}$ を用いることにより (11) 式で計算される。

$$S_{all} = \sum_{K=1}^n Ra_K \cdot S_K \quad (8)$$

$$\log \eta_L = \sum_{K=1}^n Ra_K \cdot \log \eta_{L,K} \quad (9)$$

$$\eta_{L,all} = \left[\sum_{K=1}^n \{(1 - S_K) \cdot Ra_K\} \log \eta_{L,K} \right] / (1 - S_{all}) \quad (10)$$

$$\eta_{all} = \eta_{L,all} \{1 + 3 / (1/S_{all} - 1/0.52)\} \quad (11)$$

ここで得られた η_{all} を (4) 式を用いて流動度に換算する。この操作を380~500°Cで繰り返し行い、流動度の最大値の対数値をMFとする。

2.4 モデルの検証

単味炭10~16種類を配合し、モデルの検証を行った。劣質炭の定義はビトリニットの最大反射率 R_o (%) < 0.7、またはMF > 1.0の石炭とした。Fig. 3 にMFの計算値と実測値との差の絶対値

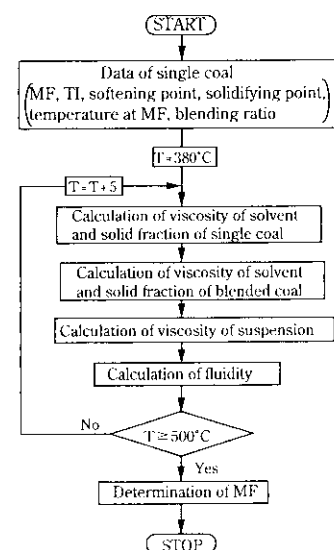
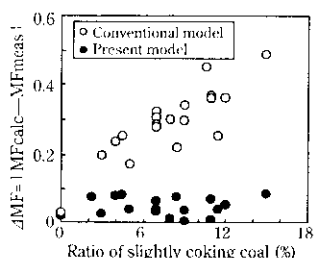


Fig. 2 Calculation flow of MF

Fig. 3 Relationship between ratio of slightly coking coal and ΔMF

ΔMF と劣質炭配合率の関係を示す。加重平均法では劣質炭配合率の増加にともない ΔMF が増大しているが、本モデルでは劣質炭配合率 0~15% の範囲において ΔMF は 0.1 以下であり本モデルによる配合炭の MF 推定精度の向上が確認された。

3 コークス収縮量推定モデル

3.1 モデルの概念

コークス炉では収縮するコークス層の内側に膨張する軟化溶融層が存在する。Fig. 4 に示すように、コークス層が軟化溶融層とコークス層の境界に向かって収縮すると仮定すると、この部分に石炭の膨張圧とコークスの収縮力が作用する。そこで炉幅方向での一次元の力のバランスを想定し、収縮力が膨張圧を上回った時点からが壁とコークス層間にクリアランスが発生するモデルとした。

3.2 モデルの構成

Fig. 5 にクリアランスの計算フローを示す。本モデルは伝熱モデル、ガス発生量推定モデル、膨張圧推定モデルおよびクリアランス計算モデルからなる。

3.2.1 伝熱計算モデル

石炭層内の温度分布は、Fourier の熱伝導方程式に、熱伝導度 $\lambda(W/(m \cdot K))$ と比熱 $C(J/(kg \cdot K))$ の温度依存性を考慮して変換温度 $\phi_T(J/(m \cdot s))$ とエンタルピー $H(J/kg)$ を導入して得られた (12) 式を用いて計算した。

$$\partial H / \partial t = (1/\rho) \cdot (\partial^2 \phi_T / \partial X^2) \quad (12)$$

$$\lambda = \partial \phi_T / \partial T \quad (13)$$

$$C = \partial H / \partial T \quad (14)$$

3.2.2 ガス発生速度計算モデル⁹⁾

ガス発生速度 $G(m^3/s)$ は榎木¹⁷⁾らが測定した単位温度当たりの熱分解ガス発生量を、ガス発生量増加過程と減少過程のそれぞれについて温度に関する 1 次式 $f(T)$ として近似し、これに昇温速度を掛けることにより (16) 式のように表した。

$$G_g = W \cdot f_g(T) \cdot (\partial T / \partial t) \quad (15)$$

$$G = \sum G_g \quad (16)$$

ここで W は石炭重量 (kg)、 t は時間 (s)、添字 g はガス種を表す。

3.2.3 膨張圧計算モデル⁹⁾

Fig. 6 のように膨張圧 $P(kPa)$ の発生機構を考え、 P を軟化溶融層での圧力損失 ΔP_M とコークス層の圧力損失 ΔP_{coke} の和として (17) 式で与える。ここで添字 M は軟化溶融層、coke はコークス層を示す。 ΔP_M は Darcy の法則を用い (18) 式で表される。ここで、

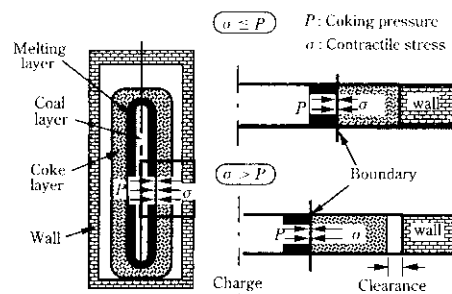


Fig. 4 Modelling of clearance generation

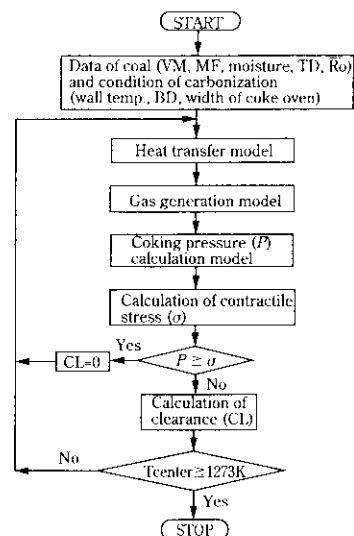


Fig. 5 Calculation flow of clearance

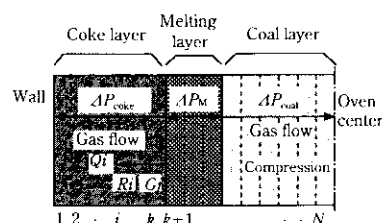


Fig. 6 Schematic diagram of generation of coking pressure

D は軟化溶融層で発生するガスがコークス層に分配される割合である。 ΔP_{coke} は (20) 式のように区間 i でのガス流量 $Q(m^3/s)$ 、通気抵抗 $Re(kPa \cdot s/m^3)$ の積の総和で示される。

$$P = \Delta P_M + \Delta P_{coke} \quad (17)$$

$$\Delta P_M = (D \cdot G_M) Re_M \quad (18)$$

$$Q_i = D \cdot G_M + \sum_{j=1}^k G_j \quad (19)$$

$$\Delta P_{coke} = \sum_{i=1}^k (Q_i \cdot Re_i) \quad (20)$$

ここで k はコークス層の区間数を示す。

3.2.4 コークス収縮量の計算

Meyer が測定したコークスの線収縮係数 $\beta^{18)}$ を (21) 式に示す温度の一次関数で近似し、区間 i での温度 T_i における収縮量 $S_i(T_i)$ (m) を (22) 式で算出し、合計して求めた。

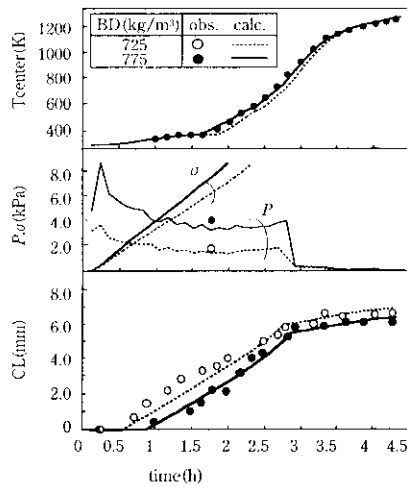


Fig. 7 Comparison between observed temperature of coke center (T_{center}), coking pressure (P), clearance (CL) and calculated value, and calculated contractile stress (σ) during carbonization

$$\beta(T) = aT + b \quad (21)$$

$$S_i(T_i) = \Delta x \cdot \int_{T_i}^T \beta(T) dT \quad (22)$$

ここで a , b は定数, Δx (m) は区間 i の幅, T_s (K) は収縮開始温度を示す。

3.2.5 収縮応力の計算

コークス層は Maxwell 型の粘弾性体と考えられるため¹⁹⁾, 応力緩和現象を考慮する必要がある, 一般式は (23) で示される。 τ (s) は一定歪条件下での応力緩和において, 初期応力が $1/e$ 倍に減衰するまでの緩和時間である。(23) 式を歪 ε 一定 ($\varepsilon = \varepsilon_0$) として解き, コークスの収縮を歪として収縮応力 σ (kPa) を計算する。

$$\partial \varepsilon / \partial t = (1/E) \cdot (\partial \sigma / \partial t) + \sigma / (E \cdot \tau) \quad (23)$$

$$\sigma = E \exp(-t/\tau) \varepsilon_0 \quad (24)$$

τ は応力一定条件下で歪速度を測定²⁰⁾し (25) 式より導出した。ヤング率 E (kPa) は Filonenko らの実験値²¹⁾を石炭の最高流動度 MF で整理し, さらに気孔率で補正した²²⁾。

$$d\varepsilon/dt = \sigma / (E \cdot \tau) \quad (25)$$

コークス層の全歪 ε_{coke} は (22) 式より次式で表される。

$$\varepsilon_{coke} = \sum \int_{T_i}^T \beta(T) dT \quad (26)$$

コークス層内では拘束条件がないとすると各区間の応力 σ は等しくなり, ε_{coke} は (27) で表され, 収縮応力は (28) 式で求められる。

$$\varepsilon_{coke} = \sum_{i=1}^k \{ \sigma / E_i(T_i) \exp(-t/\tau) \} \quad (27)$$

$$\sigma = \varepsilon_{coke} / \sum_{i=1}^k \{ 1/E_i(T_i) \exp(-t/\tau) \} \quad (28)$$

3.2.6 クリアランス計算

(a) 軟化溶融層とコークス層が共存する場合

(28) 式から求めた σ と (17) 式から求めた P を比較し, $\sigma \leq P$ の場合, コークスケーキは膨張圧によって炉壁に押しつけられるため, クリアランス CL (mm) は 0 となる。 $\sigma > P$ の場合, クリアランスは各コークス区間の収縮量 CL_i (mm) の総和であり (30) 式で表される。

$$CL_i(T_i) = \Delta x \cdot \int_{T_i}^T \sigma(T) dT \quad (29)$$

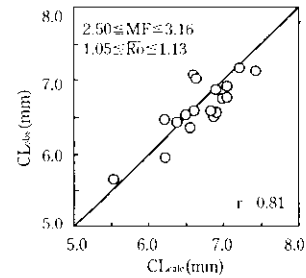


Fig. 8 Comparison between observed clearance (CL_{obs}) and calculated one on (CL_{cal}) at various MF and $\bar{R}_o$

$$CL = \sum_{i=1}^k CL_i(T_i) \quad (30)$$

(b) コークス層のみ存在する場合

コークス収縮量の計算のみとなる。炉中央部の収縮が開始すると, 中央部に亀裂が生じ, 炉壁から炭芯までのコークスの重心に向かって両側から収縮することになるため, クリアランスはコークス重心区分 k' までの収縮量の総和となる。

$$CL = \sum_{i=1}^{k'} CL_i(T_i) \quad (31)$$

3.3 モデルの検証

クリアランスの経時変化はレーザー変位計で小型試験炉²³⁾で測定した。結果を Fig. 7 に示すが, クリアランスの実測値と計算値はよく一致している。石炭性状の影響は, 配合炭の性状を変化させて乾留し, 最終クリアランスをレーザー変位計で測定した。Fig. 8 に示すように計算値と実測値は一致し, 本モデルの妥当性を確認した。

4 配合設計への適用

4.1 配合設計フロー

Fig. 9 にフローを示すが, 操作条件としてコークス炉の稼働率, 装入炭の水分および粉碎粒度などを, 石炭性状として各単味炭のピ

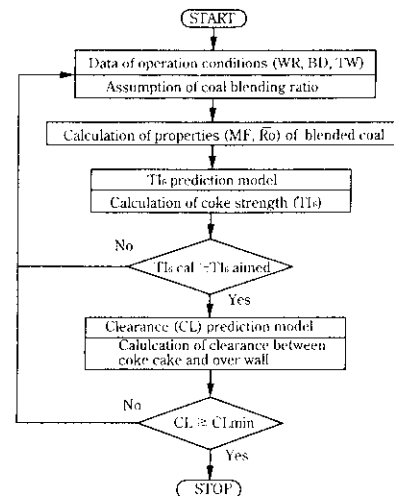
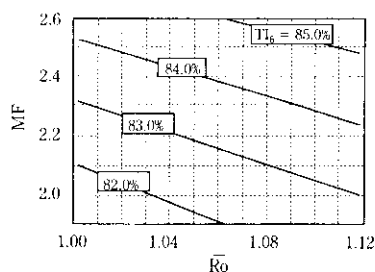
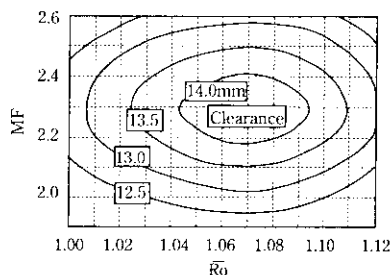
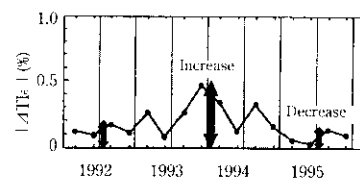


Fig. 9 Calculation flow of coal blending ratio

Fig. 10 Relationship among $\bar{R}_o$, MF and coke strength (Tl_0)Fig. 11 Relationship among $\bar{R}_o$, MF and clearance

トリニットの平均反射率 $\bar{R}_o$ とギースラー流動度の特性値を入力する。配合炭の $\bar{R}_o$ は各単味炭の加重平均値で、MF は本推定モデルで算出する。得られた MF と $\bar{R}_o$ から Fig. 10 に示すコークス強度推定式²³⁾を用いて目標のコークス強度 Tl_0 (%) を満たすように、単味炭の配合率を変化させる。次にコークスクリアランス推定モデルを用い、クリアランスが下限値以上となるように配合炭の $\bar{R}_o$ と MF を決定する。配合炭の $\bar{R}_o$ と MF およびクリアランスの関係は Fig. 11 のように表される。

Fig. 12 Quarterly change of $|\Delta Tl_0|$ until 1995

4.2 システムの運用状況

これらの推定モデルを配合設計システムに導入した結果を Fig. 12 に示す。コークス強度の実測値と推定値の差 ΔTl_0 の3ヶ月平均の絶対値は1993年以降、劣質炭の増配にともなって0.5まで増加したが、本モデル導入後、0.15まで減少している。また、1995年以降、コークス押出し負荷も低減しており、本モデルの導入がコストダウンと安定操業に大きく貢献していることがわかる。

5 結 言

劣質炭多量配合下でのコークス品質の確保とコークス炉操業の安定化を図るため、配合炭の流動度推定モデルとコークス炉の炉壁とコークスケーキ間のクリアランス推定モデルを開発した。

流動度推定モデルは、石炭の熔融状態を懸濁液として取り扱い、懸濁液の粘度を溶媒粘度と固相比率で表して、その温度依存性をギースラー流動特性と石炭の組織成分で定量化するものである。

クリアランス推定モデルは、コークス層が軟化溶融層とコークス層の境界に向かって収縮すると仮定し、この境界で軟化溶融層の膨張圧とコークスの収縮力の一次元の力のバランスを想定して、収縮力が膨張圧を上回った時点からのコークスの収縮量を計算する。

これらのモデルを配合設計システムに導入した結果、配合設計の適正化が図られ、コークス押出し負荷の軽減とコークス強度管理の精度が向上し、劣質炭多量配合下での安定操業を継続している。

参 考 文 献

- 1) M. te Lindert and J. Tilma: Ironmaking Proc. AIME, **46**(1987), 313
- 2) 陽田 潔, 山本武一, 関部昭彦: CAMP-ISIJ, **6**(1993), 954
- 3) Valery I. Addes: Ironmaking Proc. AIME, **52**(1993), 303
- 4) N. Uyemura, H. Mabuse, T. Nakano, and S. Nishida: Ironmaking Proc. AIME, **45**(1986), 453
- 5) 花岡浩二, 井川勝利, 藤井徹也: CAMP-ISIJ, **5**(1992), 50
- 6) 船曳佳弘, 佐藤信吉, 村上幸雄, 鈴木喜夫, 板垣省三, 木沢正敏: 材料とプロセス, **1**(1988), 978
- 7) 中島龍一, 長谷部新次, 船曳佳弘, 松村 進, 平岡英伸: 材料とプロセス, **2**(1989), 1003
- 8) 伊藤茂雄, 小松利幸, 佐藤孝紀: 材料とプロセス, **2**(1989), 1005
- 9) 佐々木昌弘, 美浦義明: コークスサーキュラー, **35**(1986), 225
- 10) A. Einstein: Ann. Physik, **19**(1906), 286
- 11) J. Robinson: J. Phys. Colloid Chem., **53**(1949), 1042
- 12) 森 芳郎, 乙竹 直: 化学工学, **20**(1956), 488
- 13) 矢木 栄, 乙竹 直: 工業化学雑誌, **61**(1958), 1404
- 14) 諸富秀俊, 鈴木喜夫, 宮津 隆, 志村 勝: 燃料協会誌, **53**(1974), 779
- 15) 石川鐵弥: 「混合液粘度の理論」, (1968), 102 [丸善]
- 16) 中川鶴太郎: 「レオロジー」, (1978), 114 [岩波全書]
- 17) 桜木義夫, 藤島一郎, 田辺仁志: コークスサーキュラー, **34**(1985)3, 181
- 18) C. Meyer: Gluckauf-Forschungshefte, **42**(1981), 233
- 19) Dainton, A. D.: Fuel, **41**(1962), 279
- 20) 主代晃一, 松井 貴, 花岡浩司, 井川勝利, 反町健一: 鉄と鋼, **81**(1995), 625
- 21) Yu. Ya. Filonenko and V. N. Sharipov: Khimiya Tverdogo Topliva, **12**(1978), 104
- 22) 杉辺英孝, W. Klose: 鉄と鋼, **71**(1985), S19
- 23) 井川勝利, 笠岡玄樹, 大島弘信: 鉄と鋼, **78**(1992), 1093